



Lattice-matched Magnetic Tunnel Junctions Consisting of Highly Spin-polarized Co₂FeAl Heusler Alloy Electrodes and a Spinel Barrier

著者	Thomas Scheike
発行年	2016
その他のタイトル	高スピン分極Co ₂ FeAlホイスラー合金電極とスピネルバリアを用いた格子整合強磁性トンネル接合
学位授与大学	筑波大学 (University of Tsukuba)
学位授与年度	2016
報告番号	12102甲第7960号
URL	http://hdl.handle.net/2241/00148120

氏 名	Thomas Scheike			
学 位 の 種 類	博 士 (工 学)			
学 位 記 番 号	博 甲 第 7960 号			
学位授与年月日	平成 28 年 11 月 30 日			
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当			
審 査 研 究 科	数理解物質科学研究科			
学 位 論 文 題 目	Lattice-matched Magnetic Tunnel Junctions Consisting of Highly Spin-polarized Co ₂ FeAl Heusler Alloy Electrodes and a Spinel Barrier (高スピン分極 Co ₂ FeAl ホイスラー合金電極とスピネルバリアを用いた格子整合強磁性トンネル接合)			
主 査	筑波大学教授	博士(工学)	三谷 誠司	
副 査	筑波大学教授	Ph.D.	宝野 和博	
副 査	筑波大学教授	理学博士	宇治 進也	
副 査	筑波大学教授	理学博士	黒田 眞司	

論 文 の 要 旨

本論文は、高スピン分極率を有する Co₂FeAl ホイスラー合金を電極層に、スピネル系酸化物をトンネルバリア層に用いることによって、格子整合した強磁性トンネル接合を作製し、その構造及びトンネル磁気抵抗効果を研究した結果をまとめたものである。研究背景としては、スピントロニクス of 主要デバイスである磁気ランダムアクセスメモリ (MRAM) の高性能化には、その中心素子となる強磁性トンネル接合素子の特性向上が必須であるという応用分野からの要求がある。現在主流の CoFeB/MgO 系の強磁性トンネル接合の磁気抵抗比は室温で 300%程度であるが、もしこれを 1,000%程度かそれ以上に大きくすることができれば、MRAM の性能改善にとどまらず、新しいアーキテクチャの高集積度 MRAM の実現も可能であると考えられている。磁気抵抗比が 300%程度に留まっていることの一因として、接合界面の欠陥の影響が考えられており、更に、磁気抵抗比のバイアス電圧依存性の改善にも界面欠陥の低減が効果的であることが指摘されている。MgAlO に代表されるスピネル系酸化物は Fe や Co を主要元素とする強磁性合金とほぼ同じ格子定数を有しており、界面に欠陥のない格子整合強磁性トンネル接合の作製に有用な新規バリア材料である。また、これまでにない大きさの磁気抵抗比を有する強磁性トンネル接合の創成には高いスピン分極率を有する Co₂FeAl などのホイスラー合金に期待が持たれている。

本研究では、超高真空成膜装置における直流および高周波スパッタ法と、最適化された熱処理プロセスによって、高品位の Co₂FeAl/MgAlO/CoFe 強磁性トンネル接合や Co₂FeAl/MgAlO/Co₂FeAl 強磁性トンネル接合を作製し、構造解析によって格子整合した電極/バリア界面が形成されていること、熱処理条件に応じて Co₂FeAl の B2 規則化構造や MgAlO のスピネル構造が得られることを明らかにした。トンネル

磁気抵抗効果に関しては、 $\text{Co}_2\text{FeAl}/\text{MgAlO}$ 界面への極薄 CoFe 層の挿入が磁気抵抗比を改善させると同時に、トンネル抵抗の大幅な低下が生じることを見出した。一方の電極層のみを Co_2FeAl とした場合には、室温磁気抵抗比が最大で 280%、両方の電極層を Co_2FeAl にした場合には 340% に達する大きな値を得た。後者は、 MgAlO バリアを用いた強磁性トンネル接合において、これまでで最大の大きさのトンネル磁気抵抗効果である。また、物理的側面から注目される成果としては、上記の 340%の磁気抵抗比がスピネル規則化構造を有する MgAlO バリアにおいて得られていることである。 Fe 系および FeCo 系電極材料における 200%を超えるようなトンネル磁気抵抗効果は、コヒーレントトンネル効果によって顕在化する Δ_1 バンドの高スピン分極率（ハーフメタル性）によって理解されているが、同時にスピネル規則化によって、この現象が抑制されることが知られている（スピネル規則化に伴うバンド折りたたみ効果）。しかしながら、本研究のスピネル規則化した MgAlO バリアを有するトンネル接合では 300% を超える磁気抵抗比が得られており、このことは Co_2FeAl がハーフメタル性を有することを強く示唆しており、 Co_2FeAl のハーフメタル性を示す新たな実験結果として非常に興味深い。以下に、本論文の各章の内容を説明する。

第1章はイントロダクションであり、本研究に関連するスピントロニクス歴史がまとめられている。強磁性トンネル接合のハードディスクのヘッドへの応用や、磁気ランダムアクセスメモリへの応用についても触れられている。

第2章では、まず、トンネル効果の物理的基礎や強磁性トンネル接合について説明を行っている。トンネル磁気抵抗効果の発現メカニズムやコヒーレントトンネル効果についても詳しい説明が与えられている。続いて、ホイスラー合金およびスピネル酸化物の構造と物性を概説している。 Co_2FeAl などのホイスラー合金では、構造に応じて大きなスピン分極率を有する。スピネル酸化物、特に MgAl_2O_4 が Fe 、 CoFe 、 Co_2FeAl などと良い格子整合性を有することが述べられている。スピネル規則化した MgAl_2O_4 のバンド折りたたみ効果についても言及されている。

第3章は実験方法であり、超高真空スパッタ装置や、それによって作製された試料構造の概略が示されている。デバイス作製やトンネル磁気抵抗効果測定のためのプローバについても説明が付されている。

第4章は実験結果とその考察であり、本論文のハイライトである。まず、 $\text{Co}_2\text{FeAl}/\text{MgAlO}/\text{CoFe}$ 接合の結果が示されており、室温 235%の磁気抵抗比や、スピン依存伝導の温度依存性、バイアス電圧依存性が詳しく述べられている。モデル計算による解析も入念に行われている。 CoFe 極薄層を Co_2FeAl と MgAlO の間に挿入した場合の結果も示されており、 CoFe 層の挿入がトンネル抵抗を1桁下げるという注目すべき結果が示されている。ナノ構造解析によって、界面にほとんどミスフィット転位のない格子整合構造が得られていることをも報告している。

この章では更に、 $\text{Co}_2\text{FeAl}/\text{MgAlO}/\text{Co}_2\text{FeAl}$ 接合の結果も示されており、種々の最適化の結果、室温で 340%を超える磁気抵抗比とその関連データが詳しく述べられている。スピン依存伝導特性の温度依存性とバイアス電圧依存性の詳細な測定結果もまとめられている。構造解析とトンネル磁気抵抗の測定結果からは、この研究における重要成果が得られている。先にも述べたように、スピネル規則化によってバンド折りたたみが生じている状況において 300%を超える大きなトンネル磁気抵抗効果が得られており、 Δ_1 バンドのハーフメタル性とある程度分離された形で Co_2FeAl のバルク的なハーフメタル性が強く示唆されている。

第4章では新規物質開発についても結果が示されており、4元系スピネルバリアとして、 Li ドープした

MgAlO バリアを用いた強磁性トンネル接合の結果がまとめられている。多様なスピネルバリアが大きな磁気抵抗比を示すことを意味しており、スピネルバリアにおける幅広い材料設計の可能性を主張している。

第5章は、研究成果をまとめた総括である。

審 査 の 要 旨

〔批評〕

本論文では、スピントロニクスの中核的素子である強磁性トンネル接合に関して、理想構造を追求するという立場から研究を推進している。スピネル系バリア材料により、界面の構造欠陥のない格子整合構造を実現すると同時に、高スピン分極を有する Co_2FeAl 電極層を用いている。徹底した取り組みであり、研究の意義が感じ取られる。ただし同時に、最終的に得られた磁気抵抗比は、MgAlO 系では最高であるものの 1,000% というような革新性のある値には至っていない。そのため、実用特性の改善という意味では、ホイスラー合金を用いた意義が必ずしも明確になっていないという側面もある。

しかしながら、格子整合した強磁性トンネル接合の系統的なデータを得ることに成功しており、スピン依存伝導特性の温度依存性およびバイアス電圧依存性は有用な結果であると言える。また、構造と磁気抵抗比の関連性も実験的に明らかにしており、今後の磁気抵抗比 1,000% を狙う研究の足がかりにもなると期待される。

上記に加え、B2 規則化した Co_2FeAl を上下電極層にもち、MgAlO バリアにもスピネル規則性が認められる高品位かつ高度に構造制御された強磁性トンネル接合を実現したことは、成膜技術面からも評価できる成果であると言える。これは著者が強磁性トンネル接合の作製に関して高いレベルの技術開発を行ったことを意味しており、工学的な意義が大きい。同時に、この多彩な規則化を実現したトンネル接合では、理論から予想されるバンド折りたたみによる磁気抵抗比の低下は生じておらず、 Co_2FeAl のハーフメタル性を表す実験成果が得られている。基礎物性的な観点からも注目される結果である。

〔最終試験結果〕

平成28年10月17日、数理物質科学研究科学学位論文審査委員会において審査委員の全員出席のもと、著者に論文について説明を求め、関連事項につき質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって、合格と判定された。

〔結論〕

上記の論文審査ならびに最終試験の結果に基づき、著者は博士(工学)の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。